

**ANTIREFLECTION FILM AND LIGHT EMITTING DISPLAY ELEMENT USING THE SAME****Publication number:** JP2001249222**Publication date:** 2001-09-14**Inventor:** UCHIYAMA AKIHIKO; KUSHIDA TAKASHI; TSUJIKURA SHOICHI**Applicant:** TEIJIN LTD**Classification:**

**- International:** G02B5/30; C08G64/06; C08J5/18; C08L25/06;  
C08L71/12; G02B1/11; G09F9/00; G02B5/30;  
C08G64/00; C08J5/18; C08L25/00; C08L71/00;  
G02B1/10; G09F9/00; (IPC1-7): G02B5/30; C08G64/06;  
C08J5/18; C08L25/06; C08L71/12; G02B1/11; G09F9/00

**- european:****Application number:** JP20000057020 20000302**Priority number(s):** JP20000057020 20000302[Report a data error here](#)**Abstract of JP2001249222**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an antireflection film which can effectively prevent light reflection by the reflective surface having a large reflexivity, such as a metal electrode incorporated in an electroluminescence display element, with a wideband wavelength, and to provide a display element using the same. **SOLUTION:** The antireflection film is composed of a phase difference film consisting of one polymeric oriented film whose phase differences in the wavelengths of 450 nm and 550 nm easily  $\sqrt{R(450)} < \sqrt{R(550)}$  and a polarizing plate wherein  $\sqrt{R(450)}$  and  $\sqrt{R(550)}$  are the absolute values (nm) of the intra-plane phase difference in the wavelengths of 450 nm and 550 nm, respectively.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開 2001-249222

(P 2001-249222A)

(43) 公開日 平成13年9月14日 (2001. 9. 14)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
G 0 2 B 5/30		G 0 2 B 5/30	2H049
C 0 8 G 64/06		C 0 8 G 64/06	2K009
C 0 8 J 5/18	C E T	C 0 8 J 5/18	C E T 4F071
	C F D		C F D 4J002
C 0 8 L 25/06		C 0 8 L 25/06	4J029
審査請求 未請求 請求項の数 1 5	O L	(全 1 9 頁)	最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-57020 (P2000-57020)

(22) 出願日 平成12年3月2日 (2000. 3. 2)

(71) 出願人 000003001

帝人株式会社

大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号

(72) 発明者 内山 昭彦

東京都日野市旭が丘4丁目3番2号 帝人株式会社東京研究センター内

(72) 発明者 串田 尚

東京都日野市旭が丘4丁目3番2号 帝人株式会社東京研究センター内

(74) 代理人 100077263

弁理士 前田 純博

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 反射防止フィルム及びそれを用いてなる発光表示素子

(57) 【要約】

【課題】 本発明の目的は、電界発光表示素子内部に組み込まれた金属電極等の反射性の大きい反射面による光反射を、広帯域の波長で効果的に防止できる反射防止フィルム及びそれを用いてなる表示素子を提供することにある。

【解決手段】 1枚の高分子配向フィルムからなり、かつ波長450nm及び550nmにおける位相差が $|R(450)| < |R(550)|$ を満たす位相差フィルムと偏光板とから構成されることを特徴とする反射防止フィルムである。ここで $|R(450)|$ 、 $|R(550)|$ はそれぞれ波長450nm、550nmにおける面内位相差の絶対値(nm)である。)

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 1 枚の高分子配向フィルムからなり、かつ波長 450 nm 及び 550 nm における位相差が下記\*

$$|R(450)| < |R(550)| \quad (1)$$

(上記式 (1) において  $|R(450)|$ 、 $|R(550)|$  はそれぞれ波長 450 nm、550 nm における面内位相差の絶対値 (nm) である。)

【請求項 2】 位相差フィルムの位相差が四分の一波長であることを特徴とする請求項 1 記載の反射防止フィルム※

$$0.6 < R(450)/R(550) < 0.97 \quad (2)$$

$$1.01 < R(650)/R(550) < 1.4 \quad (3)$$

(上記式 (3) 中、 $R(650)$  は波長 650 nm における高分子配向フィルムの面内位相差である。) を満たす請求項 1 または 2 記載の反射防止フィルム。

【請求項 4】 波長 400~700 nm において位相差フィルムの位相差が短波長ほど小さい請求項 1~3 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

【請求項 5】 さらに、位相差が二分の一波長である位★

$$0.6 < R(450)/R(550) < 1 \quad (10)$$

$$1 < R(650)/R(550) < 1.4 \quad (11)$$

(上記式 (10) 及び (11) 中の定義は上記に同じである。) を満たす請求項 5 記載の反射防止フィルム。

【請求項 7】 位相差フィルムが、

(1) 正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位 (以下、第 1 のモノマー単位という。) と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位 (以下、第 2 のモノマー単位という。) とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450)/R(550)$  は、該第 2 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450)/R(550)$  よりも小さく、かつ

(3) 正の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルムからなることを特徴とする請求項 1~6 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

【請求項 8】 位相差フィルムが、

(1) 正の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位 (以下、第 1 のモノマー単位という。) と負の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位 (以下、第 2 のモノマー単位という。) とを含む高分子から構成されるフィルムであって、

(2) 該第 1 のモノマー単位に基づく高分子の  $R(450)/R(550)$  は、該第 2 モノマー単位に基づく高分子の  $R(450)/R(550)$  よりも大きく、かつ

(3) 負の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルムからなる請求項 1~6 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

【請求項 9】 前記高分子配向フィルムの吸水率が 1 重量% 以下であることを特徴とする請求項 1~8 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

\*式 (1) を満たす位相差フィルムと偏光板とから構成されることを特徴とする反射防止フィルム。

【数 1】

$$|R(450)| < |R(550)| \quad (1)$$

※ム。

【請求項 3】 位相差フィルムの波長 450 nm、550 nm 及び 650 nm における位相差が、下記式 (2) 及び (3)

【数 2】

$$0.6 < R(450)/R(550) < 0.97 \quad (2)$$

$$1.01 < R(650)/R(550) < 1.4 \quad (3)$$

★相差フィルムが積層されていることを特徴とする請求項 2 記載の反射防止フィルム。

【請求項 6】 位相差が二分の一波長である位相差フィルム及び四分の一波長である位相差フィルムは、いずれも波長 450 nm、550 nm 及び 650 nm における位相差が、下記式 (10) 及び (11)

【数 3】

$$0.6 < R(450)/R(550) < 1 \quad (10)$$

$$1 < R(650)/R(550) < 1.4 \quad (11)$$

【請求項 10】 前記高分子配向フィルムがフルオレン骨格を有するポリカーボネートを含む請求項 1~9 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

【請求項 11】 前記正の屈折率異方性を有する高分子がポリ (2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンオキサイド) であり、前記負の屈折率異方性を有する高分子がポリスチレンであり、そして該ポリスチレン含有割合が 67 重量%~75 重量%であることを特徴とする請求項 8 記載の反射防止フィルム。

30 【請求項 12】 発光素子における光出射側に設けて用いることを特徴とする請求項 1~11 のいずれかに記載の反射防止フィルム。

【請求項 13】 光出射側から順に、基板、透明電極、ホール輸送層、発光層、電子輸送層及び金属電極層を具備してなる発光素子において、請求項 1~12 のいずれかに記載の反射防止フィルムが光出射側に設けられていることを特徴とする発光素子。

【請求項 14】 請求項 1~12 のいずれかに記載の反射防止フィルムを構成する位相差フィルムが発光素子の基板を兼ねていることを特徴とする請求項 13 記載の発光素子。

【請求項 15】 発光素子が有機電界発光素子であることを特徴とする請求項 13 または 14 記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、反射防止フィルム及びそれを用いた発光素子に関し、発光素子としては、特に、有機薄膜を電界発光層に用いる有機電界発光ディスプレイに好適な表示素子、及びそれに有用な反射防止フィルムに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】発光素子、特に有機電界発光素子（一般には有機EL素子と称されることもある）は、観測者に対して発光層の裏側に金属電極を有しており、外光が存在することによって、その金属電極からの反射光が発生したり、また観測者側の風景が写り込んだりすることにより、著しく表示品位を下げってしまうといった問題がある。その金属反射を防ぐ目的で円偏光板を反射防止フィルムとして発光素子の前面基板上に用いる技術がすでに知られている。円偏光板は偏光板と四分の一波長板である位相差フィルムからなるが、この位相差フィルムとしては、高分子フィルムを延伸した高分子配向フィルム等を用いる技術が開示されている。

【0003】このような従来の位相差フィルムを円偏光フィルムとして使用した場合には、位相差が四分の一波長となるある特定の波長のみで良好な反射防止効果が得られるが、可視光例えば、波長400nm～700nmといった広帯域において良好な反射防止を得ることができず、その結果、反射光が色付いたりするといった問題があった。

【0004】他方、複数枚の位相差フィルムを使うことで、位相差の波長分散特性を改良し、これらの問題を解決しようとする技術も提案されている。

【0005】しかし、このような複数枚からなる位相差フィルムを使用した場合、フィルム間に粘着剤を必要とすること、歩留まりが低下すること、面倒な光学設計が\*

$$|R(450)| < |R(550)| \quad (1)$$

（上記式（1）において $|R(450)|$ 、 $|R(550)|$ はそれぞれ波長450nm、550nmにおける面内位相差の絶対値（nm）である。）

【0010】また本発明は、上記反射防止フィルムが光出射側に設置されてなる発光素子、特に光出射側から順に、基板、透明電極、ホール輸送層、発光層、電子輸送層及び金属電極層を具備してなる発光素子において、上記反射防止フィルムが光出射側に設けられている発光素子である。

【0011】位相差フィルムの位相差が短波長ほど小さいことは、実用的な観点から上記式（1）で表わすことができるが、 $R(450)$ と $R(550)$ は同符号である必要がある。本発明は1枚で上記式（1）を満足する位相差フィルムと偏光板とからなる反射防止フィルムであり、特に該位相差フィルムとして四分の一波長の位相差を有するフィルムを発光素子、特に外光存在下で金属電極の反射が問題となる発光素子において用いることにより、非常に優れた発光素子を提供することができる。

【0012】本発明における位相差フィルムは上記式

（1）を満足している必要があるが、可視光領域のすべての波長に対して、四分の一波長の位相差を持つことまたはそれに近い値を取ることがより好ましい。

【0013】ここで、本発明の反射防止フィルムが発光素子、特に有機電界発光素子においてどのような原理で

\*必要になること等でコストが非常に高いものとなってしまうなど多くの問題がある。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記のような実状を鑑みてなされたものであって、電界発光表示素子内部に組み込まれた金属電極等の反射性の大きい反射面による光反射を、広帯域の波長で効果的に防止できる反射防止フィルム及びそれを用いてなる表示素子を提供することにある。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、可視光波長域において波長に依存しない理想的な $\lambda/4$ 板を得ることを高分子配向フィルムにおいて実現するものを探求する過程で、位相差が短波長ほど小さい1枚の高分子配向フィルムを提供することを見出し、これと偏光板とを組み合わせることで上記目的を達成し、従来にない優れた特性を有する反射防止フィルム及びそれを用いてなる発光素子を提供するに到ったものである。

【0008】すなわち本発明は、1枚の高分子配向フィルムからなり、かつ波長450nm及び550nmにおける位相差が下記式（1）を満たす位相差フィルムと偏光板とから構成されることを特徴とする反射防止フィルムである。

## 【0009】

## 【数4】

$$(1)$$

反射防止が可能となるかについて図2を用いて説明する。

【0014】図2は1が外光で、偏光板13を通過した後は2の直線偏光となる。その後、四分の一波長である位相差フィルム14を通過後、右回り（または左回り）円偏光となる。7、8、9、10、11はそれぞれ基板、透明電極、ホール輸送層、発光層、電子輸送層であるが、これらは光学的に等方なので、3の偏光状態はほとんど変化せず、12の金属電極層に到達する。反射後、偏光状態が4のように左回り（または右回り）円偏光に変化し、再び14の位相差フィルムを通過後は直線偏光2とは180度位相がずれた直線偏光5となる。そのため直線偏光5は偏光板13を通過することが出来ず、外光が吸収されるため反射防止機能を発現することが出来る。なお、図2では偏光板13、位相差フィルム14は基板7から離れているように見えるが、これは原理を説明するためであって、実際これらは粘着剤等を用いて密着していることが輝度向上や反射防止効果の点で好ましい。

【0015】また、6は発光素子からの発光光であるが、これは通常無偏光であるので、位相差フィルム14の影響は受けない。また、偏光フィルム13においてある程度光は吸収はされるが透過することが出来る。また、発光層10からの発光光は通常無偏光であるが、輝

度向上のため偏光光でもよい。

【0016】上記説明は、位相差フィルムが可視光領域においてその位相差が四分の一波長もしくはそれに近い状態になっている波長についてであるが、このような波長分散性を有することによって、直線偏光が円偏光になり反射光が漏れることがなく、着色が少なく、コントラストが良好となる。一般に、通常の高分子材料からなる位相差フィルムは長波長側で位相差が小さく、短波長側で大きいといった具合に理想の四分の一波長板とは全く逆の特性を有しており、この場合にはある特定の波長の光に対しては反射を防止することが可能であるが、表示品位が求められる発光素子の場合には大変不都合である。

【0017】上記説明は特に有機電界発光素子についてのものであるが、それ以外の発光素子である無機電界発光素子、フィールドエミッション表示装置、プラズマ表示装置等でも本発明の反射防止フィルムは使用し得る。

【0018】本発明における位相差フィルムが、位相差が短波長ほど小さい1枚の高分子配向フィルムによって実現されるその原理について以下に推定する。そのような位相差フィルムは、下記(A)または(B)の条件を満たす高分子配向フィルムによって得ることができることが見い出された。

【0019】(A) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位(以下、第1のモノマー単位という。)と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位(以下、第2のモノマー単位という。)とを含む高分子から構成されるフィルムであって、(2) 該第1のモノマー単位に基づく高分子の $R(450)/R(550)$ は、該第2のモノマー単位に基づく高分子の $R(450)/R(550)$ よりも小さく、かつ(3) 正の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルム。

【0020】(B) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位(以下、第1のモノマー単位という。)と負の屈折率異方性を有する高分子を形成するモノマー単位(以下、第2のモノマー単位とい

$$\Delta n = \Delta n^{\circ} A f A \phi A + \Delta n^{\circ} B f B \phi B + \Delta n F \quad (a)$$

ここで、 $\Delta n^{\circ} A$  : 高分子Aの固有複屈折、 $\Delta n^{\circ} B$  : 高分子Bの固有複屈折、 $f A$  : 高分子Aの配向関数、 $f B$  : 高分子Bの配向関数、 $\phi A$  : 高分子Aの体積分率、 $\phi B$  : 高分子Bの体積分率( $=1 - \phi A$ )、 $\Delta n F$  : 構造的複屈折である。一般に複屈折 $\Delta n$ は $\Delta n = f \Delta n^{\circ}$ で表される。また、 $\Delta n^{\circ}$ は二色性赤外分光法と位相差測定等を組み合わせて求めることが出来る。

【0027】(a)式はポリマーA、B間の電子的な相互作用による分極率の変化は完全に無視しているが、以下でもこの仮定を採用する。また、本発明のような位相差フィルム用途では、光学的に透明であることが要求されることから、ブレンドは相溶ブレンドであることが好

う。)とを含む高分子から構成されるフィルムであって、(2) 該第1のモノマー単位に基づく高分子の $R(450)/R(550)$ は、該第2のモノマー単位に基づく高分子の $R(450)/R(550)$ よりも大きく、かつ(3) 負の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルム。

【0021】上記(A)(B)の条件を満たす態様の例として、下記条件(C)(D)を満たすものがある。

【0022】(C) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子と負の屈折率異方性を有する高分子とからなるブレンド高分子及び/又は正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位とからなる共重合体から構成されるフィルムであって、(2) 該正の屈折率異方性を有する高分子の $R(450)/R(550)$ は該負の屈折率異方性を有する高分子の $R(450)/R(550)$ よりも小さく、かつ(3) 正の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルム。

【0023】(D) (1) 正の屈折率異方性を有する高分子と負の屈折率異方性を有する高分子とからなるブレンド高分子及び/又は正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位とからなる共重合体から構成されるフィルムであって、(2) 該正の屈折率異方性を有する高分子の $R(450)/R(550)$ は該負の屈折率異方性を有する高分子の $R(450)/R(550)$ よりも大きく、かつ(3) 負の屈折率異方性を有する、高分子配向フィルム。

【0024】ここで、正又は負の屈折率異方性を有する高分子とは、正又は負の屈折率異方性を有する高分子配向フィルムを与える高分子をいう。

【0025】この位相差フィルムが、測定波長が短いほど位相差が小さくなる必要条件である理由を以下に記す。

【0026】一般に、高分子Aと高分子Bの二成分からなる高分子ブレンドの複屈折 $\Delta n$ は、以下のように表されることが知られている。(H. Saito and T. Inoue, J. Pol. Sci. Part B, 25, 1629 (1987))

ましく、この場合には、 $\Delta n F$ は非常に小さく無視することが出来る。

【0028】次に測定波長が短いほど複屈折が小さくなる位相差フィルムについてであるが、この測定波長として、ここでは450, 550nmのみ考えることとする。この位相差フィルムのこれらの波長における複屈折をそれぞれ、 $\Delta n(450)$ 、 $\Delta n(550)$ とすると、 $\Delta n(450)/\Delta n(550) < 1$ と表せる。通常の高分子フィルムからなる位相差フィルムは $\Delta n(450)/\Delta n(550) > 1$ であることは言うまでもなく、例えばビスフェノールAとホスゲンの重合から得られるポリカーボネートの $\Delta n(450)/\Delta n(550)$ は1.08程度であり、複屈折の波長分散が小さいといわれるポリビニールアルコールでも1.01程度であ

る。

\*分散係数とすると、(a)式を用いて次の様に表され

【0029】この $\Delta n(450) / \Delta n(550)$ を複屈折波長\*

$$\begin{aligned} & \Delta n(450) / \Delta n(550) \\ &= (\Delta n^0 A(450) f_A \phi_A + \Delta n^0 B(450) f_B \phi_B) / \\ & (\Delta n^0 A(550) f_A \phi_A + \Delta n^0 B(550) f_B \phi_B) \quad (b) \end{aligned}$$

【0030】ここで、相溶ブレンドであるので $f_A =$  ※る。

$f_B$ と仮定すると、(b)式は以下のように書き表せ ※

$$\begin{aligned} & \Delta n(450) / \Delta n(550) \\ &= (\Delta n^0 A(450) \phi_A + \Delta n^0 B(450) \phi_B) / \\ & (\Delta n^0 A(550) \phi_A + \Delta n^0 B(550) \phi_B) \quad (c) \end{aligned}$$

【0031】次に表1に記すような仮想的な値を(c) ★りに、高分子A、B単独の複屈折分散値を記した。

式に用いて、複屈折波長分散値について検討した。な

【0032】

お、表1では $\Delta n^0 A(450)$ 、 $\Delta n^0 B(450)$ の代わ★

【表1】

ケース	$\Delta n^0 A$	$\Delta n^0 B$	$\Delta n^0 A(450) / \Delta n^0 A(550)$	$\Delta n^0 B(450) / \Delta n^0 B(550)$
1	0.2	-0.1	1.01	1.15
2	0.2	-0.1	1.15	1.01
3	0.1	-0.2	1.01	1.15
4	0.1	-0.2	1.15	1.01

【0033】式(c)は表1の値が与えられると $\phi_A$ の関数としてそれぞれ図3～6のように表される。ケース1～4はそれぞれ図3～6に対応する。表1では正の屈折率異方性を有する高分子を高分子A、負のそれを高分子Bとしているので、図3～6に記した漸近線よりも $\phi_A$ の少ない領域では、ブレンド高分子の光学異方性は負であり、一方、漸近線よりも $\phi_B$ の多い領域は異方性は正である。

【0034】図3～6より明らかなように、 $\Delta n(450) / \Delta n(550) < 1$ となるためには、表1のケース1、3のように、正の高分子の複屈折波長分散係数が負のそれよりも小さくかつ該高分子配向フィルムの光学異方性が正であるか、または、ケース2、4のように高分子単独の複屈折波長分散係数が負のそれよりも大きくかつ該高分子配向フィルムの光学異方性が負である必要がある。ここでは、代表的な波長として450、550nmを用いたが、他の波長を用いても同様に成立する。

【0035】なお、(c)式より考察すると、正と負の高分子の複屈折波長分散係数が完全に等しい場合には、本発明の位相差フィルムは得られない。

【0036】上記考察は、上記式(a)を基にした考察であるが、後述する実施例のように実際の系でもこの考え方は非常によく成り立つので、この考え方が正しいことは実施例でも証明される。

【0037】上記の考察は2成分について述べたが、3成分以上でも上記の考え方は成立する。例えば、正の光学異方性を有する成分が2成分と負の異方性を有する成分が1成分である系では、正の光学異方性を有する成分の複屈折率値及び複屈折分散値等を正の異方性の2成分

間の体積分率等で補正し、この2成分を1成分と見なして上記式(a)以下の考察の考え方を適用することが可能である。

【0038】また、上記式(a)に基づく説明は高分子A、Bのブレンドとして説明したが、高分子が異なるモノマー単位を含む共重合体の場合にも上述した考察の考え方は同様に成立し、第1のモノマー単位に基づく単独重合体(高分子A)と第1のモノマー単位と異なる第2のモノマー単位に基づく単独重合体(高分子B)とから成ると見なして上記の考え方を適用すればよい。

【0039】さらに、単独重合体と共重合体との高分子ブレンドあるいは共重合体どうしの高分子ブレンドでも、上述した考察の考え方を同様に適用することができる。即ち、この場合には、高分子ブレンドの成分高分子を構成するモノマー単位に分けて、その高分子ブレンドをそれぞれのモノマー単位からなる単独重合体の集合体と見なし、この集合体を正の光学異方性を有する単独重合体の群からなる成分Aと負の異方性を有する単独重合体の群からなる成分Bとの組合せと見なして、上記の考察を適用すればよい。

【0040】例えば、正の光学異方性を有する高分子X、Yと、負の光学異方性を有するモノマー単位x、zの共重合体において、xが正の光学異方性を有し、zが負の光学異方性を有する場合には、正の光学異方性を有する成分は、X、Y及びxからなると考えて、これらの複屈折率値及び複屈折分散値等を正の異方性の3成分間の体積分率等で補正して、これらの3成分を1成分Aとみなし、負の異方性を有する成分はモノマー単位zからなる重合体Bと見なして、成分A及び成分Bについて、

上記 (a) 以下の考察の考え方を適用すればよい。

【0041】なお、第1又は第2のモノマー単位に基づく単独高分子において、単独高分子がポリカーボネートの場合、ポリカーボネート重合法で広く用いられている方法の1つは、ジヒドロキシ化合物とホスゲンとの重縮合により得られるので、重合の観点からは、ビスフェノールからなるジヒドロキシ化合物とホスゲンがモノマーになる。このようにポリカーボネートの場合は、モノマー単位はビスフェノールに由来する部分をいい、ホスゲンに由来する部分は含まない。

#### 【0042】

【発明の実態の形態】本発明の反射防止フィルムは、1枚の高分子配向フィルムからなり、波長 450nm及び 550nmにおける位相差が下記式 (1) を満たす位相差フィルムと偏光板とからなることを特徴としている。R(450)、R(550)は同符号である必要がある。

#### 【0043】

##### 【数5】

\*

$$0.6 < R(450) / R(550) < 0.97 \quad (2)$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.4 \quad (3)$$

を満足することである。より好ましくは下記式 (4) 及び (5) を満足することである。

※ 【0047】

$$0.70 < R(450) / R(550) < 0.90 \quad (4)$$

$$1.03 < R(650) / R(550) < 1.25 \quad (5)$$

【0048】測定波長450nm, 550nm, 650nmで完全に四分の一波長の位相差を与える場合には、それぞれ位相差値はR(450)=112.5nm、R(550)=137.5nm、R(650)=162.5nmであるので、それぞれの上記波長分散値は R(450)/R(550)=0.818、R(650)/R(550)=1.182となる。このような位相差の波長分散の範囲とすることにより、可視光の広い範囲で反射防止効果が得られ、発光素子に用いた場合に外光存在下においてコントラストに優れて色等の視認性低下の問題も防止できる。

【0049】上記特性を高分子配向フィルム1枚で満足するための材料に対する原理についてはすでに述べたので、以下具体的な材料について説明する。

【0050】高分子配向フィルムはガラス転移点温度が120℃以上、好ましくは140℃以上であることが好ましい。120℃未満では、発光素子の使用条件にもよるが配向緩和等の問題が発生する場合がある。また、吸水率は1重量%以下であることが好ましい。高分子配向フィルムの吸水率が1重量%以下でない位相差フィルムとして実用する上で問題がある場合があり、フィルム材料はフィルムの吸水率が1重量%以下、好ましくは0.5重量%以下の条件を満たすように選択することが良い。

【0051】本発明に用いられる高分子配向フィルムは、ブレンド高分子からなるものでも共重合体からなるものでもよい。

【0052】本発明に用いられる高分子配向フィルムを

$$* |R(450)| < |R(550)| \quad (1)$$

【0044】かかる位相差フィルムは、四分一波長の位相差を有するもの、すなわち $\lambda/4$ 板が好適である。ここでは位相差が四分一波長であるとは、測定波長が550nmに対して四分の一波長であるとする。本発明の反射防止フィルムは表示素子において主に用いられることを想定しており、人間の目の視感度が比較的高い波長である550nmを用いて定義した。具体的には測定波長が550nmにおいて位相差値R(550)の範囲が $100\text{nm} \leq R(550) \leq 170\text{nm}$ であることが好ましく、より好ましくは $120\text{nm} \leq R(550) \leq 155\text{nm}$ である。

【0045】位相差フィルムの位相差波長分散として好ましくは、測定波長450nm, 550nm, 650nmの位相差値R(450)、R(550)、R(650)で表すと、下記式 (2) 及び (3)

#### 【0046】

##### 【数6】

$$0.6 < R(450) / R(550) < 0.97 \quad (2)$$

$$1.01 < R(650) / R(550) < 1.4 \quad (3)$$

※ 【0047】

$$0.70 < R(450) / R(550) < 0.90 \quad (4)$$

$$1.03 < R(650) / R(550) < 1.25 \quad (5)$$

構成する高分子材料は特に限定されず、耐熱性に優れ、光学性能が良好で、溶液製膜ができる材料、例えばポリアリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリオレフィン、ポリエーテル、ポリスルフィン系共重合体、ポリスルホン、ポリエーテルスルホンなどの熱可塑性ポリマーが好適である。

【0053】この熱可塑性ポリマーを用いた場合、上述したように、正の屈折率異方性を有する高分子と負の屈折率異方性を有する高分子とからなるブレンド高分子、正の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位と負の屈折率異方性を有する高分子のモノマー単位とからなる共重合体により好適である。それらは2種類以上組合せてもよく、また1種類以上のブレンド高分子と1種類以上の共重合体とを組合せて用いてもよい。

【0054】ブレンド高分子であれば、光学的に透明である必要があることから相溶ブレンドまたは、各々の高分子の屈折率が略等しいことが好ましい。ブレンド高分子の具体的な組み合わせとしては、例えば負の光学異方性を有する高分子としてポリ(メチルメタクリレート)と、正の光学異方性を有する高分子としてポリ(ビニリデンフロライド)、ポリ(エチレンオキサライド)及びポリ(ビニリデンフロライド-コートリフルオロエチレン)からなる群から選ばれる少なくとも一種のポリマーとの組み合わせ、正の光学異方性を有する高分子としてポリ(フェニレンオキサライド)と、負の光学異方性を有する高分子としてポリスチレン、ポリ(スチレン-コー

ラウロイルマレイミド)、ポリ(スチレン- $\alpha$ -シクロヘキシルマレイミド)及びポリ(スチレン- $\alpha$ -フェニルマレイミド)からなる群から選ばれる少なくとも一種のポリマーとの組み合わせ、負の光学異方性を有するポリ(スチレン- $\alpha$ -マレイン酸無水物)と正の光学異方性を有するポリカーボネートとの組み合わせ、正の光学異方性を有するポリ(アクリロニトリル- $\alpha$ -ブタジエン)と負の光学異方性を有するポリ(アクリロニトリル- $\alpha$ -スチレン)との組み合わせ、正の光学異方性を有するポリカーボネートと負の光学異方性を有するポリカーボネートとの組み合わせを好適に挙げることができるが、これらに限定されるものではない。特に透明性の観点から、ポリスチレンと、ポリ(2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキサイド)等のポリ(フェニレンオキサイド)とを組み合わせたブレンドポリマー、正の光学異方性を有するポリカーボネートと負の光学異方性を有するポリカーボネートとを組み合わせたブレンド体が好ましい。前者の場合、該ポリスチレンの比率が全体の67重量%以上75重量%以下を占めることが好ましい。後者の場合、正の光学異方性を有するビスフェノールAを

【0055】また、共重合体としては例えばポリ(ブタジエン- $\alpha$ -ポリスチレン)、ポリ(エチレン- $\alpha$ -ポリスチレン)、ポリ(アクリロニトリル- $\alpha$ -ブタジエ\*

\*ン)、ポリ(アクリロニトリル- $\alpha$ -ブタジエン- $\alpha$ -スチレン)、ポリカーボネート共重合体、ポリエステル共重合体、ポリエステルカーボネート共重合体、ポリアリレート共重合体等を用いることが出来る。特に、フルオレン骨格を有するセグメントは負の光学異方性となり得るため、フルオレン骨格を有するポリカーボネート共重合体、ポリエステル共重合体、ポリエステルカーボネート共重合体、ポリアリレート共重合体等はより好ましく用いられる。

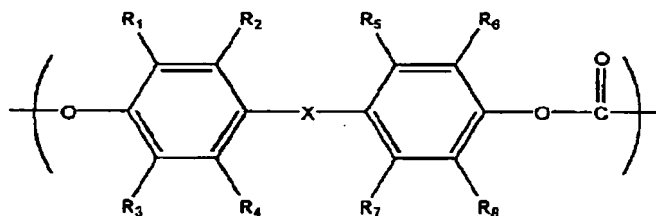
10 【0056】上記高分子材料は、2種類以上の共重合体のブレンド体でもよく、1種類以上の共重合体と上記ブレンド体または他のポリマーとからなるブレンド体であってもよく、2種類以上のブレンド体または共重合体または他のポリマーのブレンド体でもよい。これらの場合、該ビスフェノールフルオレン成分の全体における含有率は、30~90モル%とすることが好適である。

20 【0057】ビスフェノール類とホスゲンあるいは炭酸ジフェニルなどの炭酸エステル形成性化合物と反応させて製造されるポリカーボネート共重合体は透明性、耐熱性、生産性に優れており特に好ましく用いることが出来る。ポリカーボネート共重合体としては、フルオレン骨格を有する構造を含む共重合体であることが好ましい。フルオレン骨格を有する成分は式(I)で表わされる繰返し単位であり、繰返し単位全体の1~99モル%含まれていることが好ましい。

【0058】具体的には、下記式(I)

【0059】

【化1】

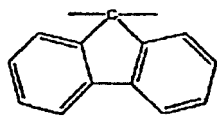


(I)

【0060】(上記式(I)において、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数1~6の炭化水素基から選ばれる少なくとも一種であり、Xは

【0061】

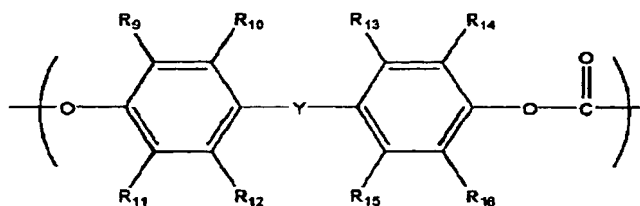
【化2】



【0062】である。)で示される繰返し単位を30~90モル%と、下記式(II)

【0063】

40 【化3】



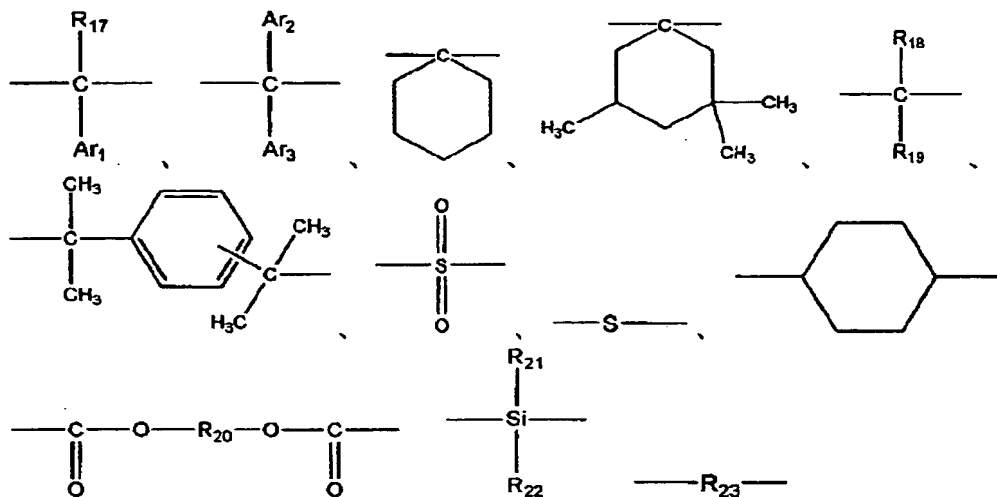
(II)

【0064】（上記式 (II)）において、 $R_9 \sim R_{16}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1～2 の炭化水素基から選ばれる少なくとも一種であり、 $Y^*$

\*は下記式群

【0065】

【化 4】



【0066】（ここで、 $Y$ 中の $R_{17} \sim R_{19}$ 、 $R_{21}$ 及び $R_{22}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1～22 の炭化水素基から、 $R_{20}$ 及び $R_{23}$ はそれぞれ独立に炭素数 1～20 の炭化水素基から選ばれ、 $Ar$ は炭素数 6～10 のアリール基から選ばれる少なくとも一種の基である。）で示される繰り返し単位が全体の 70～100 モル%を占めるポリカーボネート共重合体が挙げられる。

【0067】上記式 (I) において、 $R_1 \sim R_8$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1～6 の炭化水素基から選ばれる。かかる炭素数 1～6 の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、シクロヘキシル基等のアルキル基、フェニル基等のアリール基が挙げられる。この中で、水素原子、メチル基が好ましい。

【0068】上記式 (II) において、 $R_9 \sim R_{16}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1～22 の炭化水素基から選ばれる。かかる炭素数 1～22 の炭化水素基としては、メチル基、エチル基、イソプロピル基、シクロヘキシル基等の炭素数 1～9 のアルキル基、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基等のアリール基が挙げられる。この中で、水素原子、メチル基が好ましい。

【0069】上記式 (II) の $Y$ において、 $R_{17} \sim R_{19}$ 、 $R_{21}$ 及び $R_{22}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子及び炭素数 1～22 の炭化水素基から選ばれる少なくとも

一種の基である。かかる炭化水素基については、上記したものと同じものを挙げることができる。 $R_{20}$ 及び $R_{23}$ はそれぞれ独立に炭素数 1～20 の炭化水素基から選ばれ、かかる炭化水素基については、上記したものと同じものを挙げることができる。 $Ar$ はフェニル基、ナフチル基等の炭素数 6～10 のアリール基である。

【0070】本発明における高分子配向フィルムは、フルオレン骨格を有するポリカーボネートを用いたものが好ましい。このフルオレン骨格を有するポリカーボネートとしては、例えば上記式 (I) で表わされる繰り返し単位と上記式 (II) で表わされる繰り返し単位とからなるポリカーボネート共重合体、上記式 (I) で表わされる繰り返し単位からなるポリカーボネートと上記式 (I) で表わされる繰り返し単位からなるポリカーボネートとのブレンド体がよく、上記式 (I) の含有率、すなわち共重合体の場合共重合組成、ブレンド体の場合ブレンド組成比は、ポリカーボネート全体の 30～90 モル%が好適である。かかる範囲を外れた場合には、小さい位相差値を有する位相差フィルムを均一に得ることが困難となる。上記式 (I) の含有率は、ポリカーボネート全体の 35～85 モル%が好ましく、50～80 モル%がより好ましい。

【0071】上記共重合体は、上記式 (I) および (I) で表わされる繰り返し単位をそれぞれ 2 種類以上組み合わせたものでもよく、ブレンド体の場合も、上記繰り返し単位はそれぞれ 2 種類以上組み合わせてもよい。

30

40

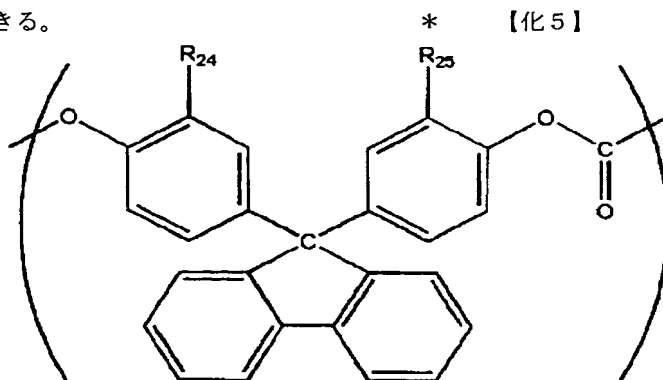
50

【0072】ここで上記モル比は共重合体、ブレンド体に関わらず、高分子配向フィルムを構成するポリカーボネートバルク全体で、例えば核磁気共鳴(NMR)装置により求めることができる。

\*【0073】上記フルオレン骨格を有するポリカーボネートとしては、下記式 (III)

【0074】

【化5】



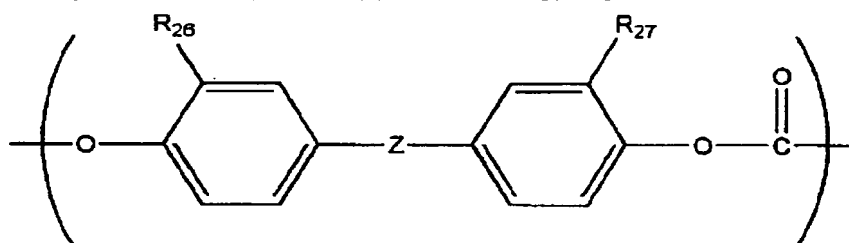
(III)

【0075】(上記式 (III) において、 $R_{24}$  及び  $R_{25}$  はそれぞれ独立に水素原子およびメチル基から選ばれる少なくとも一種である。) で示される繰り返し単位を 3\*

※5~85モル%と、下記式 (IV)

【0076】

【化6】

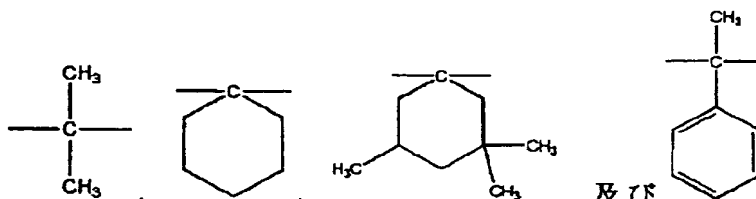


(IV)

【0077】(上記式 (IV) において、 $R_{26}$  及び  $R_{27}$  はそれぞれ独立に水素原子、メチル基から選ばれ、Zは下記式群

★【0078】

【化7】



【0079】から選ばれる少なくとも一種の基である。) が全体の65~15モル%を占めるポリカーボネート共重合体及び/またはブレンド体を用いることが特に好ましい。

【0080】上記した共重合体及び/またはブレンド体は公知の方法によって製造し得る。ポリカーボネートはジヒドロキシ化合物とホスゲンとの重縮合による方法、熔融重縮合法等が好適に用いられる。ブレンド体の場合、相溶性ブレンドが好ましいが、完全に相溶しなくても成分間の屈折率を合わせれば成分間の光散乱を抑え、透明性を向上させることが可能である。

【0081】上記ポリカーボネートの極限粘度は0.3~2.0 dl/gであることが好ましい。0.3未満では脆くなり機械的強度が保てないといった問題があり、3.0を超えると溶液粘度が上がりすぎるため溶液製膜

においてダイラインの発生等の問題や、重合終了時の精製が困難になるといった問題がある。

【0082】位相差フィルムを構成する高分子配向フィルムは透明であることが好ましく、ヘーズ値は3%以下、全光線透過率は85%以上であることが好ましい。

【0083】さらに、フェニルサリチル酸、2-ヒドロキシベンゾフェノン、トリフェニルフォスフェート等の紫外線吸収剤や、色味を変えるためのブルーイング剤、酸化防止剤等を添加してもよい。

【0084】本発明の位相差フィルムは上記ポリカーボネートなどの未延伸フィルムを延伸等を行い高分子鎖を配向させた高分子配向フィルムからなるものである。かかるフィルムの製造方法としては、公知の熔融押し出し法、溶液キャスト法等が用いられるが、膜厚むら、外観等の観点から溶液キャスト法がより好ましく用いられ

る。溶液キャスト法における溶剤としては、メチレンクロライド、ジオキソラン等が好適が用いられる。

【0085】また、延伸方法も公知の延伸方法を使用し得るが、好ましくは縦一軸延伸である。フィルム中には延伸性を向上させる目的で、公知の可塑剤であるジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート等のフタル酸エステル、トリブチルフォスフェート等のりん酸エステル、脂肪族二塩基エステル、グリセリン誘導体、グリコール誘導体等が含有してもよい。延伸時には、先述のフィルム製膜時に用いた有機溶剤をフィルム中に残留させ延伸しても良い。この有機溶剤の量としてはポリマー固形分対比1~20wt%であることが好ましい。

【0086】また、上記可塑剤や液晶等の添加剤は、本発明の位相差フィルムの位相差波長分散を変化させ得るが、添加量は、ポリマー固形分対比10wt%以下が好ましく、3wt%以下がより好ましい。特に添加剤として液晶は位相差波長分散を大きく変え得るが、本発明においては液晶はなくても良い。

【0087】位相差フィルムの膜厚としては限定するわけではないが、1μmから400μmであることが好まし\*

$$0.6 < R(450)/R(550) < 1$$

$$1 < R(650)/R(550) < 1.4$$

を満たすことが好ましい。

【0091】このようなλ/4板とλ/2板とを積層することにより、直線偏光を積層位相差フィルムに入射した際に測定波長の400~700nm、好ましくは400~780nmにおいていずれの波長でもほぼ完全な円偏光とすること、逆に完全な円偏光を積層位相差フィルムに入射した際に測定波長の400~700nmにおいていずれの波長でもほぼ完全な直線偏光を得ることができるため、可視光領域の広帯域において非常に良好な反射防止特性が得られる。本発明においては前述したような位相差波長分散特性を有する位相差フィルムが1枚でも十分な反射防止特性が得られるが、特にさらに広帯域で反射特性が問われる用途ではこのような構成も使用し得る。(1)のような特性を満足しない場合には、広帯域で非常に良好な反射防止特性を得ることが困難である。

【0092】さらにこのλ/4板とλ/2板の貼り合わせ角度については、光軸の角度が50~70度であることが好ましく、また、λ/4板とλ/2板は同じ材料からなる方が好ましいが、異なるものでも良い。ここで言う光軸とは、進相軸または遅相軸である。

【0093】このような他の位相差フィルムは、上記位相差フィルムで述べたものと同じ高分子材料を用いることができる。特に、 $R(450)/R(550)$  および  $R(650)/R(550)$  の値は、λ/4板とλ/2板とで同一であることが好ましい。

【0094】本発明の反射防止フィルムは、上記位相差フィルムと偏光板との組み合わせからなる。偏光板とこ

\*い。なお、本発明では位相差フィルムと表現しているが、共通して「フィルム」といい、あるいは「シート」といわれるいずれのものも含む意味である。

【0088】先述したように、位相差フィルムの位相差を短波長ほど小さくするためには、高分子配向フィルムを構成する高分子の化学構造が重要であり、位相差波長分散はかなりの部分がその化学構造で決まるが、製膜条件、添加剤、延伸条件、ブレンド状態、分子量等によっても変動することに留意されるべきである。

10 【0089】本発明の1つの側面として、本発明の反射防止フィルムには、さらに、上記式(1)を満たす他の位相差フィルムを1枚以上積層することができる。具体的には、上記位相差フィルムとしてλ/4板を用い、かかる他の位相差フィルムとしてλ/2板を用い、これらを積層して用いた反射防止フィルムが好適である。(このようなλ/4板とλ/2板とを積層した位相差フィルムは積層位相差フィルムと呼ぶことがある。) この場合λ/4板及びλ/2板は、いずれも下記式(10)

$$(11)$$

【0090】

【数8】

$$(10)$$

$$(11)$$

の位相差フィルムは密着していることが好ましく、粘着剤を介して貼り合わせて用いることができる。粘着剤は公知のものを使用し得るが、界面反射を低減するために、偏光板と位相差フィルムの中間の屈折率を取るような粘着剤を選択することがより好ましい。位相差フィルムの遅相軸または進相軸と偏光板の偏光軸とのなす角が45度であることが好ましい。偏光板はヨウ素系、色素系等公知のものが使用可能である。

【0095】図2の基板7の材料としては通常、ガラス基板が用いられるが、高分子材料からなるものを用いても良い。高分子材料を用いた場合には、その基板上にガスバリア層や水蒸気バリア層等のバリア層を設けても良い。該バリア層としては、硬化性樹脂層、金属酸化物層などを用いることができる。

【0096】また図2のような発光素子と本発明の反射防止フィルムとの組み合わせにおいて、発光素子が図2のような構成になっていた場合、7の基板を14の位相差フィルムで兼ねることも可能である。このようにした場合、7の基板が不要となるので、軽量化や部材低減によるコストメリットが得られる。ただし、この場合、発光素子の劣化が問題となる場合には、それらを防ぐために位相差フィルム上にガスバリア層や水蒸気バリア層等を設けても良い。これらの場合でも、偏光板と位相差フィルムの組み合わせが反射防止機能を発現するものであり、すなわち発光素子の基板を兼ねた反射防止フィルムを提供することが可能である。

50 【0097】位相差フィルムには一般に斜めからの入射

光に対しては、正面入射光と比較して異なる位相差値を与えることが知られている。本発明の反射防止フィルムが円偏光板により構成されることから、このことは斜めからの入射光に対しての反射防止効果が劣ることを示している。しかし、この問題についても鋭意検討したところ、位相差フィルムの三次元屈折率を制御することによりこのような問題を回避することが可能であることを見出した。ここで位相差フィルムの三次元屈折率とは、 $n_x$ 、 $n_y$ 、 $n_z$ で表され、それぞれの定義は、  
 $n_x$ ：位相差フィルム面内における主延伸方向の屈折率  
 $n_y$ ：位相差フィルム面内における主延伸方向に直交する方位の屈折率  
 $n_z$ ：位相差フィルム表面の法線方向の屈折率  
 とする。ここで、主延伸方向とは、該位相差フィルムが高分子配向フィルムを一軸延伸した場合には延伸方向、\*

$$N_z = (n_x - n_z) / (n_x - n_y) \quad (6)$$

があるが、これを用いて三次元屈折率を定義するならば、 $N_z$ が0.3～1.5の範囲にあるとき、非常に位相差値の入射角依存性が小さくなり好ましい。より好ましくは $N_z$ が0.4から1.1であるが、特に $N_z=0.5$ のときは位相差値の入射角依存性が実質的に無くなり、どの角度から光が入っても同じ位相差値を与えるので特に好ましい。

【0099】なお、上記定義によれば、正の光学異方性を有する位相差フィルムの遅相軸は $n_x$ 、進相軸は $n_y$ となる。

【0100】また、本発明の反射防止フィルムは、その表面に、偏光板表面での反射防止効果を狙って、公知の多層膜等からなる反射防止膜を設けたり、表面に凹凸を設けたいわゆるアンチグレア処理等をしたものを用いても良い。また、同様に防汚染層を設けても良い。

【0101】このような反射防止フィルムを発光素子の光出射面側に、位相差フィルムを発光素子の発光層側に位置するように設けることにより外光存在下でも視認性の良い表示素子を提供することができる。

【0102】有機電界発光素子においては図2に示すように発光層の裏側に金属電極を設けている。この素子においては、各層が平坦な膜として作製することが高性能化には必要であり、その結果、金属電極には鏡面の様に極めて平坦で乱反射が起こらないように設計されてい ※40

$$N_z = (n_x - n_z) / (n_x - n_y) \quad (6)$$

【0106】(2)有機電界発光素子評価系について  
 緑色に発光する有機電界発光素子を次の様に作製した。構成は図7に示す。まず、0.7mm厚のガラス基板22上にスパッタリング法により、透明電極であるITO (Indium Tin Oxide)膜を積層させた。次にITO膜上に真空蒸着法により、ホール輸送層24としてトリフェニルジアミン誘導体であるTPD (N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン)を50nm積層させた。次に発光層25としてAlq3 (トリス-

\*二軸延伸の場合にはより配向度が上がるように延伸した方向を意味しており、化学構造的には高分子主鎖の配向方向を指す。ここでは $n_x > n_z$ のときを光学異方性が正、 $n_x < n_z$ のときを光学異方性が負であると呼ぶ。この三次元屈折率は、位相差板に偏光を入射して得られる出射光の偏光状態を解析する手法である偏光解析法により測定されるが、本発明では位相差板の光学異方性を屈折率楕円体と見なして公知の屈折率楕円体の式により求める方法によりこの三次元屈折率を求めている。この三次元屈折率は使用する光源の波長依存性があるので、使用する光源波長で定義することが好ましい。この三次元屈折率を用いて光学異方性を表記する方法として下記式(6)

【0098】

【数9】

※る。従って、外光存在下ではこの金属電極で外光反射が起こり視認性が低下する。本発明の反射防止フィルムはこのような外光反射を広い波長範囲で防ぐことが可能である。有機電界発光素子の各層は公知のものを用いることが可能である。

【0103】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0104】(評価法)本明細書中に記載の材料特性値等は以下の評価法によって得られたものである。

(1)位相差値 ( $R = \Delta n \cdot d$ (nm))、 $N_z$ の測定  
 複屈折 $\Delta n$ と膜厚 $d$ の積である位相差 $R$ 値及び $N_z$ は、分光エリブソメータ『M150』(日本分光(株)製)により測定した。 $R$ 値は入射光線とフィルム表面が直交する状態で測定した。また、 $N_z$ 値は入射光線とフィルム表面の角度を変えることにより、各角度での位相差値を測定し、公知の屈折率楕円体の式でカーブフィッティングすることにより三次元屈折率である $n_x$ 、 $n_y$ 、 $n_z$ を求め、下記式(6)に代入することにより求めた。なお、その際、別のパラメータとして平均屈折率 $n = (n_x + n_y + n_z) / 3$ が必要になるが、これはアッペ屈折計((株)アタゴ社製の商品名『アッペ屈折計2-T』)により測定した。

【0105】

【数10】

(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム)を50nmの厚さに蒸着させた。この発光層は図2の電子輸送層11も兼ねている。更に、マグネシウムと銀をこの上に200nmの厚さに蒸着させ金属電極26とした。本発光素子に電圧を印加させたところ、緑色に発光することが確認できた。

【0107】本発明の主たる目的は、簡便な方法で発光素子の反射防止を広帯域の波長にて抑制することにあるので、以下の実施例、比較例ではこの有機電界発光素子

の基板上に、図 7 のように本発明の反射防止フィルムを粘着剤を介して密着させた状態で特に外光反射の低減程度を見ることにした。

【0108】外光反射の低減程度を見るにあたっては、分光光度計『U-3500』（（株）日立製作所製）を用いて 5 度の正反射測定を行うことにより評価した。このとき、ブランクとしては、上記の有機電界発光素子の基板上に位相差フィルム 21 は用いず、偏光板 20 のみを用いたものを使用した。これを各波長で反射率 100% として測定を行っている。また、偏光板上には屈折率の異なる多層膜からなる反射防止層が設置してある。この偏光板は『LLC2-9218』（（株）サンリツ製）を用いた。反射率測定においては電圧非印加状態で測定している。

【0109】なお、表 2 で  $I(\lambda)$  は波長  $\lambda$  (nm) での反射光強度を示しており、また、 $N_z(\lambda)$  は波長  $\lambda$  での  $N_z$  である。

#### 【0110】（3）吸水率の測定

乾燥させたフィルムの状態で膜厚を  $130 \pm 50 \mu\text{m}$  とした以外は、JIS K 7209 記載の『プラスチックの吸水率及び沸騰吸水率試験方法』に準拠して測定した。試験片の大きさは 50mm 正方形で、水温 25℃、24 時間サンプルを浸水させた後、重量変化を測定した。単位は % である。

#### 【0111】（4）高分子のガラス転移点温度 ( $T_g$ ) の測定

『DSC2920 Modulated DSC』（TA Instruments 社製）により測定した。フィルム成形後ではなく、樹脂重合後、フレックスまたはチップの状態で測定した。

#### 【0112】（5）フィルム膜厚測定

アンリツ社製の電子マイクロで測定した。

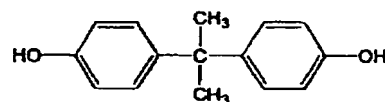
#### 【0113】（6）高分子共重合比の測定

『JNM-alpha600』（日本電子社製）のプロトン NMR により測定した。特にビスフェノール A とビスクレゾールフルオレンの共重合体の場合には、溶媒として重ベンゼンを用い、それぞれのメチル基のプロトン強度比から算出した。

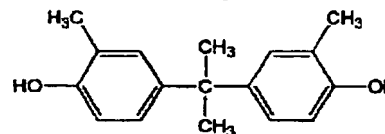
【0114】また、以下の実施例、比較例で用いたポリカーボネートのモノマー構造を以下に記す。

#### 【0115】

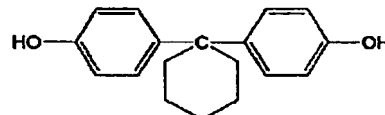
#### 【化 8】



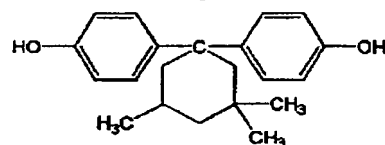
[A]



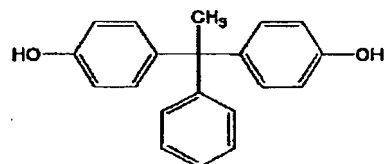
[B]



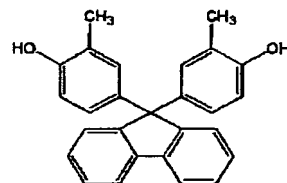
[C]



[D]



[E]



[F]

【0116】〔実施例 1〕攪拌機、温度計及び還流冷却器を備えた反応槽に水酸化ナトリウム水溶液及びイオン交換水を仕込み、これに上記構造を有するモノマー [A] と [F] を表 2 のモル比で溶解させ、少量のヒドロサルファイトを加えた。次にこれに塩化メチレンを加え、20℃でホスゲンを約 60 分かけて吹き込んだ。さらに、p-tert-ブチルフェノールを加えて乳化させた後、トリエチルアミンを加えて 30℃で約 3 時間攪拌して反応を終了させた。反応終了後有機相分取し、塩化メチレンを蒸発させてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。

【0117】この共重合体をメチレンクロライドに溶解させ、固形分濃度 20 重量% のドープ溶液を作製した。このドープ溶液からキャストフィルムを作製し、温度 230℃で 2 倍で一軸延伸し位相差板を得た。

【0118】表 2 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

【0119】この位相差フィルムの遅相軸と偏光板の偏光軸が 45 度となるように粘着剤にて貼り合わせ、それを図 7 のように粘着剤を介して発光素子を貼り合わせた。

【0120】図 1 に有機電界発光素子の電圧非印加状態の反射分光スペクトルを示す。広帯域の波長で反射率が

低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0121】〔実施例2〕表2記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度230℃2倍で一軸延伸し位相差板を得た。表2に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0122】〔実施例3〕表2記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例2と同様に製膜、温度200℃1.9倍で一軸延伸し位相差板を得た。表2に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0123】〔実施例4〕表2記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度240℃2倍で一軸延伸し位相差板を得た。表2に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長\*

\*ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0124】〔実施例5〕表2記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度250℃、1.9倍で一軸延伸し位相差板を得た。表2に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

【0125】有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0126】〔実施例6〕表2記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度230℃2.2倍で一軸延伸し位相差板を得た。表2に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は正であることを確認した。

【0127】有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0128】

【表2】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6
モノマー1構造 (仕込み量モル%)	[A] (32)	[A] (35)	[B] (59)	[C] (35)	[D] (34)	[E] (50)
モノマー2構造 (仕込み量モル%)	[F] (68)	[F] (65)	[F] (41)	[F] (65)	[F] (66)	[F] (50)
R(450) (nm)	108.6	123.9	114.1	111.0	111.5	109.7
R(550) (nm)	141.0	145.3	140.9	140.5	139.4	138.9
R(650) (nm)	156.5	152.3	152.2	153.1	153.3	151.4
R(450)/R(550)	0.770	0.853	0.810	0.790	0.800	0.790
R(650)/R(550)	1.110	1.048	1.080	1.090	1.100	1.09
Nz(550)	0.9	0.5	1.0	1.0	1.0	1.0
延伸後膜厚 (μm)	100	99	101	106	101	104
I(450) (%)	0.8	0.6	0.6	0.6	0.8	0.7
I(550) (%)	0.5	0.7	0.7	0.6	0.6	0.6
I(650) (%)	0.7	0.9	0.8	0.8	0.8	0.8
ガラス転移点温度(℃)	227	224	192	233	248	230
吸水率(重量%)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2

【0129】〔実施例7〕負の屈折率異方性を有する高分子としてポリスチレン（和光純薬工業（株）より入手）、正の屈折率異方性を有する高分子としてポリフェニレンオキサイド（ポリ（2,6-ジメチル 1,4-フェニレンオキサイド）和光純薬工業（株）より入手）を、それぞれ70, 30重量%の比率でクロロホルムに溶解させ、固形分濃度18重量%のドープ溶液を作製した。このドープ溶液からキャストフィルムを作製し、温度 130℃、3 倍に一軸延伸した。本フィルムのガラス転移点温度は 125℃であった。

【0130】表3に光学特性測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど位相差が小さくなりかつ、屈折率異方性は負であることを確認した。

【0131】有機電界発光素子は広帯域の波長で反射率が低く、電圧非印加状態において外光があっても良好な黒表示が可能となることが分かった。

【0132】参考として、ポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドのブレンド比率を変えた際の複屈折波長分散係数とポリフェニレンオキサイドの体積分率との関係を図8に記す。ポリフェニレンオキサイドの少ない領域では、光学異方性は負であり、複屈折波長分散係数が1より小さくなる領域が存在することが分かる。一方、ポリフェニレンオキサイドの多い屈折率異方性が正の領域ではその値は1より大きい。

【0133】次に、前述の式(c)を用いて計算した図8のような体積分率と複屈折波長分散係数との関係を図7に記す。図9はポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドの波長 550nmにおける固有複屈折をそれぞれ、-0.10, 0.21 (D. Lefebvre, B. Jasse and L. Monnerie, Polymer 23 706-709 (1982)を参考)として計算した。図8と図9の一致は良いといえる。ポリスチレン、ポリフェニレンオキサイドの密度はそれぞれ、1.047, 1.060 g/cm<sup>3</sup>とした。

【0134】

【表3】

10

20

30

40

50

	実施例7
R(450) (nm)	-119.1
R(550) (nm)	-138.0
R(650) (nm)	-147.8
R(450)/R(550)	0.863
R(650)/R(550)	1.071
N <sub>z</sub> (550)	1.0
延伸後膜厚 (μm)	140
I(450) (%)	0.7
I(550) (%)	0.6
I(650) (%)	0.8
ガラス転移点温度(℃)	125
吸水率(重量%)	0.3

【0135】〔比較例1〕表4記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネートホモ重合体を得た。得られたホモ重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度160℃1.1倍で延伸し位相差板を得た。表4に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなることを確認した。

【0136】このフィルムを用いて有機電界発光素子としての評価も実施してみたが、長波長側と短波長側で光の反射が大きく、外光存在下の電圧非印加状態では見た目には紫色に見え、表示品位に劣る表示素子であることが分かった。また、この素子の反射率分光特性を図1に記す。

【0137】〔比較例2〕表4記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネートホモ重合体を得た。得られたホモ重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度245℃2.0倍で延伸し位相差板を得た。表4に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きく、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0138】〔比較例3〕表4記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度180℃1.1倍で延伸し位相差板を得た。表4に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0139】〔比較例4〕表4記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重

合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃ 1.9 倍で延伸し位相差板を得た。表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0140】〔比較例 5〕表 4 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 190℃ 1.1 倍で延伸し位相差板を得た。表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0141】〔比較例 6〕表 4 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重\*

\*合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃ 1.2 倍で延伸し位相差板を得た。表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0142】〔比較例 7〕表 4 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 200℃ 1.2 倍で延伸し位相差板を得た。表 4 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0143】

【表 4】

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
モノマー 1 構造 (仕込み量モル%)	[A] (100)	[A] (19)	[A] (90)	[B] (19)	[B] (90)	[C] (10)	[C] (90)
モノマー 2 構造 (仕込み量モル%)	.	[F] (81)	[F] (10)	[F] (81)	[F] (10)	[F] (90)	[F] (10)
R(450) (nm)	148.5	-94.9	112.0	-128.6	118.3	-115.6	142.6
R(550) (nm)	137.5	-68.3	105.3	-87.9	111.7	-87.5	133.5
R(650) (nm)	132.0	-63.8	101.5	-76.8	108.4	-74.8	127.3
R(450)/R(550)	1.080	1.298	1.065	1.463	1.060	1.320	1.069
R(650)/R(550)	0.960	0.873	0.855	0.872	0.971	0.854	0.953
Nz(550)	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
延伸後膜厚 (μm)	100	109	85	106	90	120	79
I(450) (%)	20.5	.	.	.	.	.	.
I(550) (%)	0.6	.	.	.	.	.	.
I(650) (%)	8.2	.	.	.	.	.	.

【0144】〔比較例 8〕表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃ 1.5 倍で延伸し位相差板を得た。表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0145】〔比較例 9〕表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温

度 240℃ 1.8 倍で延伸し位相差板を得た。表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であることが分かった。

【0146】〔比較例 10〕表 5 記載のモノマーを使った以外は実施例 1 と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例 1 と同様に製膜、温度 240℃ 1.8 倍で延伸し位相差板を得た。表 5 に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適當であ

ることが分かった。

【0147】【比較例11】表5記載のモノマーを使った以外は実施例1と同様の方法にてポリカーボネート共重合体を得た。得られた共重合体の組成比はモノマー仕込み量比とほぼ同様であった。実施例1と同様に製膜、温度220℃2.0倍で延伸し位相差板を得た。表5に測定結果をまとめる。このフィルムは、測定波長が短波長ほど絶対値で位相差が大きくなってしまい、本発明の反射防止フィルム用位相差フィルムとしては不適当であることが分かった。

【0148】

【表5】

	比較例 8	比較例 9	比較例 10	比較例 11
モノマー1構造 (仕込み量モル%)	[D] (10)	[D] (90)	[E] (19)	[E] (90)
モノマー2構造 (仕込み量モル%)	[F] (90)	[F] (10)	[F] (81)	[F] (10)
R(450)(nm)	-124.8	171.6	-164.7	127.3
R(550)(nm)	-95.0	160.2	-134.1	120.0
R(650)(nm)	-81.8	152.9	-116.0	116.3
R(450)/R(550)	1.315	1.071	1.229	1.060
R(650)/R(550)	0.861	0.954	0.866	0.968
N <sub>z</sub> (550)	1.0	1.0	1.0	1.0
延伸後膜厚(μm)	108	77	109	85

【0149】

【発明の効果】以上説明したように、一枚で短波長ほど位相差値が小さくなるような、高分子からなる従来一般に使用されていた位相差フィルムには無かった特性を有する位相差フィルムを、反射防止フィルムの四分の一波長板として偏光板と組合せることにより、広帯域の波長で反射防止効果に優れた反射防止フィルムを生産性よく提供することが出来る。また、このような反射防止フィルムを、素子内部に組み込まれた金属電極等の光反射性の大きい発光素子、特に有機電界発光素子に用いることにより、外光の存在下でも優れた視認性を有する発光素子を安価で提供することが出来るといった効果を有する。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1及び比較例1における有機電界発光素子電圧非印加状態の反射スペクトル

【図2】本発明の有機電界発光素子における反射防止フ

イルムの原理を説明した模式図

【図3】二成分ブレンド高分子の複屈折の波長分散と高分子の種類及びブレンド比との関係を示すグラフ

【図4】二成分ブレンド高分子の複屈折の波長分散と高分子の種類及びブレンド比との関係を示すグラフ

【図5】二成分ブレンド高分子の複屈折の波長分散と高分子の種類及びブレンド比との関係を示すグラフ

【図6】二成分ブレンド高分子の複屈折の波長分散と高分子の種類及びブレンド比との関係を示すグラフ

10 【図7】実施例、比較例における有機電界発光素子の該略図

【図8】実施例7における位相差フィルムの複屈折波長分散係数とポリマー成分の体積分率との関係を示したグラフ

【図9】実施例7における位相差フィルムの複屈折波長分散係数とポリマー成分の体積分率との関係を示したグラフ

【符号の説明】

1；外光

20 2；偏光板を通過した直線偏光

3；位相差フィルムを通過した右回り（左回り）円偏光

4；裏面金属電極で反射して回転方向が反転した左回り（右回り）円偏光

5；位相差フィルムを再び通過して2と180度位相がずれた直線偏光（偏光板13を通過することが出来ずここで光吸収される）

6；発光した光

7；透明基板

8；透明電極層（ITO）

30 9；ホール輸送層

10；発光層

11；電子輸送層

12；金属電極

13；偏光板

14；位相差フィルム（四分の一波長板）

15；13、14からなる反射防止フィルム

20；偏光板

21；位相差フィルム（四分の一波長板）

22；透明基板

40 23；透明電極（ITO）

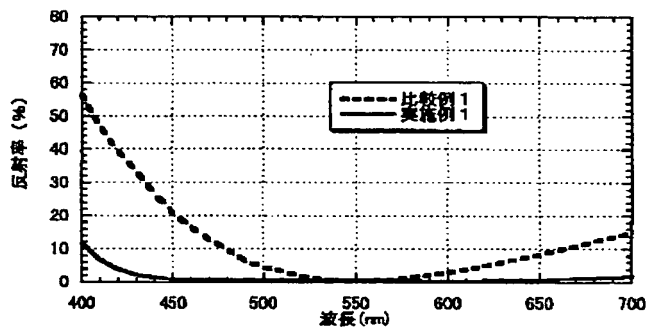
24；ホール輸送層

25；発光層

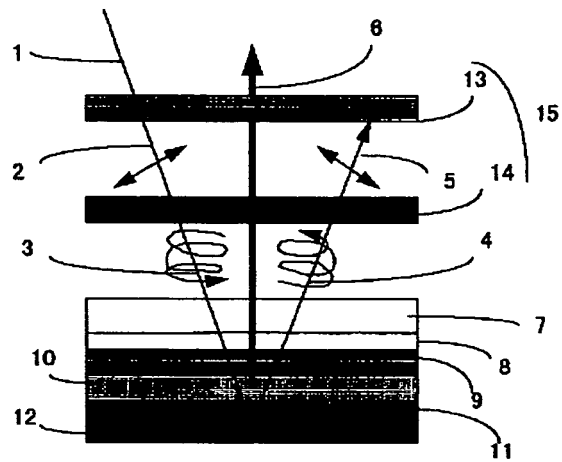
26；金属電極

27；反射防止フィルム

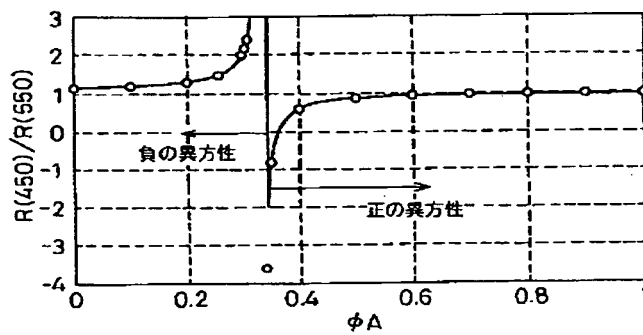
【図 1】



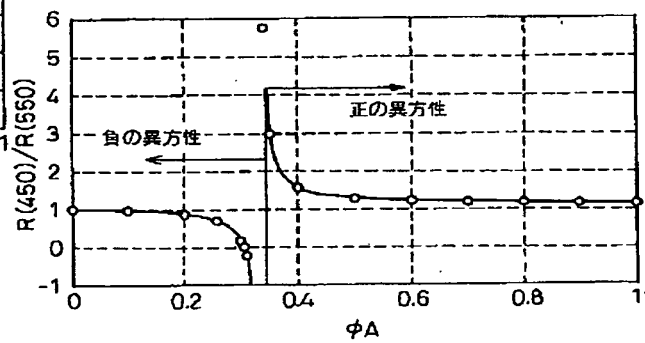
【図 2】



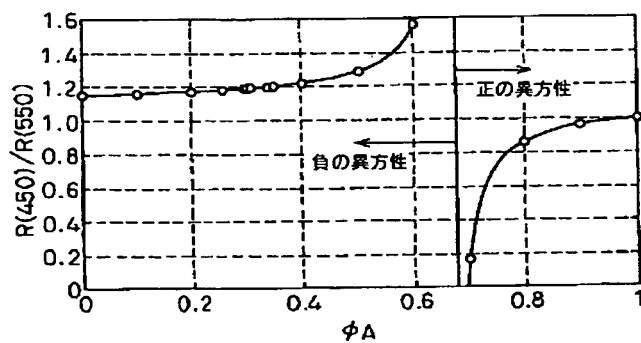
【図 3】



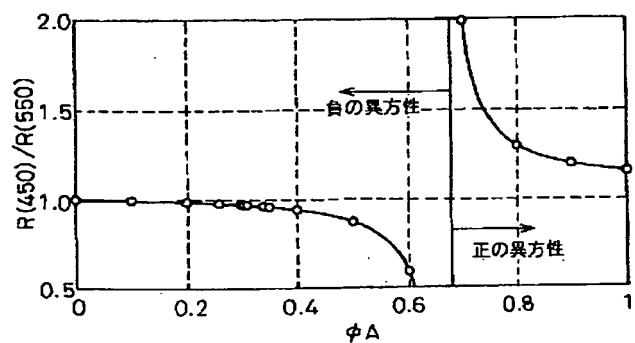
【図 4】



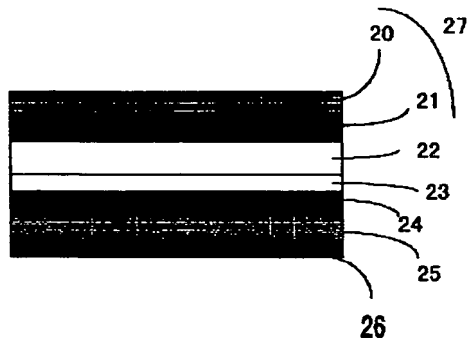
【図 5】



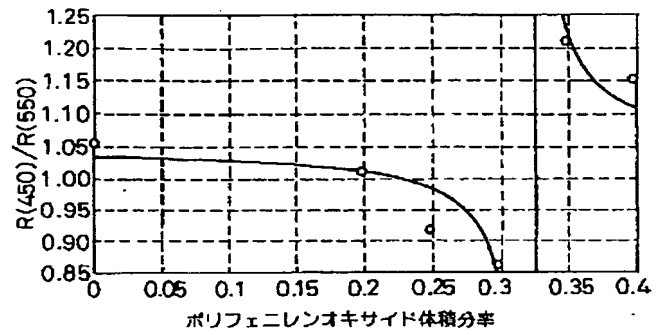
【図 6】



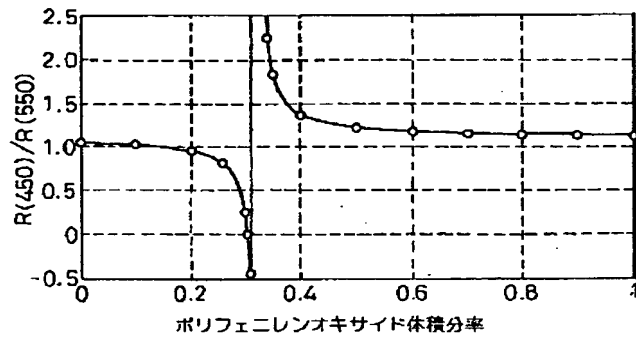
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7	識別記号	F I	テーマコード (参考)
C 0 8 L 71/12		C 0 8 L 71/12	5 G 4 3 5
G 0 2 B 1/11		G 0 9 F 9/00	3 1 3
G 0 9 F 9/00	3 1 3	G 0 2 B 1/10	A

(72) 発明者 辻倉 正一  
 東京都日野市旭が丘4丁目3番2号 帝人  
 株式会社東京研究センター内

F ターム(参考) 2H049 BA02 BA03 BA06 BA07 BA16  
BA42 BB03 BB44 BB65 BC03  
BC22  
2K009 AA01 AA02 AA12 CC21 CC34  
DD01  
4F071 AA22 AA47 AA50 AF29 AH16  
BA01 BB02 BB07 BC01 BC10  
4J002 BC031 CH072 GP00  
4J029 AA09 AB07 AC02 AD01 AD07  
AE03 AE04 BB12A BB12B  
BB16A BB16B BB16C BD09A  
BD09B BD09C BE07 BG08X  
BG08Y BG17X BH02 BH04  
DB07 DB13 HC01 HC03 HC05A  
5G435 AA01 AA03 BB05 BB12 FF00  
FF05